



# Capacité des réacteurs à sels fondus pour l'incinération des déchets et la production d'énergie

S. David, A. Nuttin

## ► To cite this version:

S. David, A. Nuttin. Capacité des réacteurs à sels fondus pour l'incinération des déchets et la production d'énergie. 2005, pp.1-18. in2p3-00025361

**HAL Id: in2p3-00025361**

**<https://hal.in2p3.fr/in2p3-00025361>**

Submitted on 11 Jan 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# **Capacité des réacteurs à sels fondus pour l'incinération des déchets et la production d'énergie**

S. David<sup>1</sup>, A. Nuttin<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay cedex

<sup>2</sup>Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, 38026 Grenoble cedex



# **Capacité des réacteurs à sels fondus pour l'incinération des déchets et la production d'énergie**

S. David<sup>1</sup>, A. Nuttin<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Institut de Physique Nucléaire, 91406 Orsay cedex

<sup>2</sup>Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie, 38026 Grenoble cedex

Contact

S. David

<sup>1</sup>Institut de Physique Nucléaire

Bat. 100

91406 Orsay cedex

e-mail : [sdavid@ipno.in2p3.fr](mailto:sdavid@ipno.in2p3.fr)

tél: 01 69 15 69 52

## 1. Introduction

Les concepts de réacteurs à sels fondus présentent un nombre significatif d'avantages dans le cadre du développement des systèmes du futur de 4<sup>ème</sup> génération, qu'ils soient dédiés à la production d'énergie et/ou à l'incinération de déchets. Les caractéristiques spécifiques des RSF sont :

- taux de combustion élevé, ce qui limite la quantité de matières radioactives envoyée aux déchets et ce qui réduit la quantité de déchets secondaires,
- retraitement possible sur site (en ligne ou en batch), et gestion in situ de l'aval du cycle (réduction significative des transports de matières fissiles et radioactives),
- rendements élevés, grâce aux hautes températures atteintes par le système,
- bilan neutronique favorable grâce au recyclage en ligne ou en batch, ce qui permet d'atteindre la surgénération avec le cycle thorium en spectre de neutrons thermiques.

Le potentiel de ce type de réacteur, notamment dans le domaine des déchets et des surgénérateurs basés sur le cycle thorium, explique le développement de nouveaux concepts de RSF. Après un récapitulatif des principales études menées sur les RSF depuis les années 50, nous présentons les nouveaux concepts, étudiés notamment par le CEA, EDF le CNRS, et dans le cadre du projet européen MOST du 5<sup>ème</sup> PCRD, ainsi que les axes de recherche qui ont été identifiés. Ces réacteurs nécessitent encore une R et D importante tant sur les problèmes de corrosion lié au sel que sur les procédés de traitement de leur combustible usé.

## 2. Historique des études sur les RSF

Le concept de RSF est né aux Etats-Unis dans les années 50, à l'Oak Ridge national Laboratory (Tennessee). Le premier RSF expérimental est issu d'un programme militaire américain sur la propulsion des avions devant allier autonomie, compacité et légèreté. L'Aircraft Reactor Experiment (ARE) est mis en service en 1954, et fonctionne de façon satisfaisante une centaine d'heures à la puissance de 2.5 MWth. Dans cette expérience, le sel est un mélange de fluorures (53% NaF – 41% ZrF<sub>4</sub> – 6% UF<sub>4</sub>) qui a une température de fusion de 500°C. Le cœur est constitué d'un bloc d'oxyde de béryllium destiné à modérer les neutrons. Le sel circule dans ce bloc de béryllium et sort à une température de 850°C. Un

problème de corrosion est survenu et a été rapidement maîtrisé. L'expérience a mis en évidence une stabilité suffisante du réacteur et un bon comportement du sel sous irradiation.

Le programme de propulsion nucléaire est arrêté en 1957, mais les bons résultats de l'ARE encouragent la poursuite des recherches sur les RSF à l'ORNL. Les études s'orientent vers un usage civil pour la production d'électricité et débouchent sur la mise en service en 1964 d'un réacteur expérimental : Molten Salt Reactor Experiment (MSRE) d'une puissance de 8MWth. Dans ce système, le cœur est constitué de graphite percé de canaux pour la circulation du sel combustible et des barres de contrôle. Le premier sel utilisé est un fluorure de lithium et de béryllium (« flibe ») : 65%  ${}^7\text{LiF}$  – 29%  $\text{BeF}_2$  – 5%  $\text{ZrF}_4$  – 1%  $\text{UF}_4$ . Ce sel échange sa chaleur avec un sel constituant le circuit secondaire (66%  $\text{LiF}$  – 34%  $\text{BeF}_2$ ). Le lithium utilisé dans le sel combustible est enrichi à 99.995% en  ${}^7\text{Li}$  afin de réduire l'empoisonnement neutronique et la production de tritium dû à la présence de  ${}^6\text{Li}$  (réaction  ${}^6\text{Li} + n \rightarrow t + \alpha$ ). De 1965 à 1968, l'uranium du sel est de l'uranium enrichi à 30% en  ${}^{235}\text{U}$ . De 1968 à 1969, le réacteur fonctionnera avec le même sel dans lequel l'uranium enrichi aura été remplacé par de l' ${}^{233}\text{U}$  pur.

Durant 5 années de fonctionnement sans incident, le facteur de charge est de l'ordre de 85%. Les problèmes de corrosion rencontrés dans l'ARE sont résolus grâce à l'utilisation de l'hastalloy-N (68% Ni – 17% Mo – 7% Cr – 5% Fe) comme matériau de structure pour la cuve et les tuyauteries. L'expérience démontre la tenue des matériaux à la corrosion et à l'irradiation, ainsi que la stabilité des sels fluorures. Le pilotage du système en mode critique est maîtrisé. Toutefois, il sera établi que le passage au stade industriel d'un RSF fonctionnant en spectre thermique et avec un combustible Th/U demande une étape supplémentaire de démonstration, notamment du point de vue du retraitement en ligne du combustible. L'expérience du MSRE aura tout de même testé la fluoration de l'uranium contenu dans le sel, étape clé du retraitement d'un combustible Th/U.

Le projet industriel MSBR (Molten Salt Breeder Reactor) voit le jour en 1969, et fait suite aux résultats encourageants de l'expérience MSRE. Il s'agit d'un projet de RSF électrogène fonctionnant avec le cycle thorium, d'une puissance électrique de 1GW. L'ensemble des études réalisées forme un tout cohérent et très complet, tant au niveau de la thermohydraulique que du retraitement en ligne. Le cœur du MSBR est constitué d'un bloc de graphite percé de canaux dans lequel le sel combustible circule de bas en haut en se réchauffant d'une centaine de degrés. La température moyenne du sel dans le cœur est de 650°C. Le sel envisagé est un sel de fluorures : 72%  ${}^7\text{LiF}$  – 16%  $\text{BeF}_2$  – 12%  $(\text{Th} + \text{U})\text{F}_4$ . Le circuit secondaire contient un autre sel : 92%  $\text{NaBF}_4$  – 8%  $\text{NaF}$ , et le rendement thermique global se situe entre 40 et 45%.

L'unité de retraitement associée a pour but d'extraire les produits de fission du sel, ainsi que le protactinium, qui sera laissé hors cœur le temps qu'il décroisse pour produire l' ${}^{233}\text{U}$ , alors réinjecté dans le sel. La totalité du sel combustible (50 m<sup>3</sup>) est retraitée en une dizaine de jours. Le système est surgénérateur. L'inventaire en  ${}^{233}\text{U}$  nécessaire au démarrage est de l'ordre d'une tonne, son taux de surgénération de 1.05 ; le temps de doublement de la filière est donc de l'ordre de 25 ans.

Ce projet se heurte à la concurrence des surgénérateurs à neutrons rapides, de conception plus classique, basés sur le cycle U/Pu et refroidis au sodium. Aux Etats-Unis, les études sur le MSBR sont arrêtées en 1976, pour des raisons politiques et financières, dues en partie à l'isolement de l'ORNL, seul laboratoire américain à travailler sur les RSF. En France, ces

études sont poursuivies jusqu'en 1983 à EDF et au CEA. Ces travaux de ré-évaluation ont permis d'approfondir les problèmes liés à la sûreté et d'acquérir une meilleure connaissance du retraitement en ligne.

D'autres projets et études voient le jour dans les années 80, notamment au Japon (THORIMS-NES Thorium Molten Salt Nuclear Energy Synergetics). La voie des surgénérateurs en spectre thermique basée sur le cycle thorium est explorée dans différentes variantes, ainsi que la voie des réacteurs rapides basés sur le cycle U/Pu. Dès la fin des années 80, le concept de réacteur à combustible liquide trouve un nouveau domaine d'application dans le cadre des études sur la transmutation des actinides. L'organisme japonais JAERI étudie un concept RSF à neutrons rapides dédiés à l'incinération de transuraniens sur support inerte (sels chlorures). En 1992, C. Bowman adapte le concept du MSBR à un réacteur RSF à spectre très thermalisé dédié à l'incinération et à la dénaturation du plutonium issu des centrales à eau légères. Ce système est sous-critique, alimenté par une source de neutrons externe produits par un faisceau de protons frappant une cible de spallation en plomb liquide. Son retraitement est de type « once-through », c'est-à-dire que chaque jour un volume donné de sel est retiré du système et remplacé par du sel frais. Ce système permet une incinération et une dénaturation rapide du plutonium, et a été évaluée en France par le CEA, EDF et le CNRS.

En France, le cycle thorium en RSF est relancé dans les années 1990 par différents concepts :

- TASSE (Thorium based Accelerator driven System with Simplified fuel cycle for Energy generation) étudié au CEA.
- AMSTER (Actinide Molten Salt TransmutER) étudié à EDF.
- TMSR (Thorium Molten Salt Reactor) étudié au CNRS.

Ces dernières études s'accompagnent d'efforts expérimentaux. Le programme européen MOST est ainsi chargé d'établir le bilan des recherches sur les RSF précédemment évoquées dans le but de définir les besoins en R&D.

### 3. L'expérience MSRE

Le projet MSRE a débuté en 1960. Le combustible sélectionné était mélange de fluorures d'uranium, de lithium, de béryllium et de zirconium. La composition initiale était 0.9%  $\text{UF}_4$ -5%  $\text{ZrF}_4$  – 29%  $\text{BeF}_2$  – 65%  $^7\text{LiF}$ . La chaleur produite dans le sel était transférée par le sel combustible à un circuit secondaire (sel fondu également) par l'intermédiaire d'échangeurs de chaleur. La chaleur du circuit secondaire était dissipée vers l'atmosphère. Le graphite du cœur était en contact direct avec le sel combustible ; il servait de structure au cœur du réacteur et de modérateur pour les neutrons. Toutes les autres structures du système étaient faites d'un acier nickel-molybdène-fer-chrome appelé « hastelloy-N », développé spécialement pour cette expérience. La puissance thermique maximale était de 7.3 MW. Le sel circulait de bas en haut, entrant dans le cœur à 635°C et sortait à 663°C. La circulation du sel était assurée par une pompe associée à un dispositif astucieux de chargement de sel sous forme solide (« ball pump »), qui permet également d'effectuer l'opération de bullage sur le sel combustible (extraction des produits de fission gazeux). Il était possible d'évacuer rapidement le sel du réacteur dans des réservoirs prévus à cet effet, couplés au réacteur par des bouchons de sels solides.

La construction du MSRE a débuté en 1962, et la première divergence a eu lieu en 1965. Le fonctionnement en régime continu a débuté en 1966 et a duré plusieurs mois, sans observation

d'attaque corrosive sur les structures (graphite et hastalloy-N). Cette étape a mis en évidence la grande stabilité chimique du sel radioactif.

La seconde phase de l'expérience MSRE a débuté en 1968, avec une petite unité de retraitement associée au réacteur. L'extraction de l'uranium par fluoration a ainsi été testée. Cette étape a permis de retirer l' $^{235}\text{U}$  du cœur et de le remplacer par de l' $^{233}\text{U}$ . Le MSRE a été ainsi le premier réacteur à diverger en utilisant l' $^{233}\text{U}$  comme matière fissile. En 1969, une petite quantité de  $\text{PuF}_3$  a été ajoutée au sel combustible dans le but d'étudier le comportement du plutonium dans un réacteur à sels fondus. L'expérience pris fin en 1969 pour des raisons budgétaires.

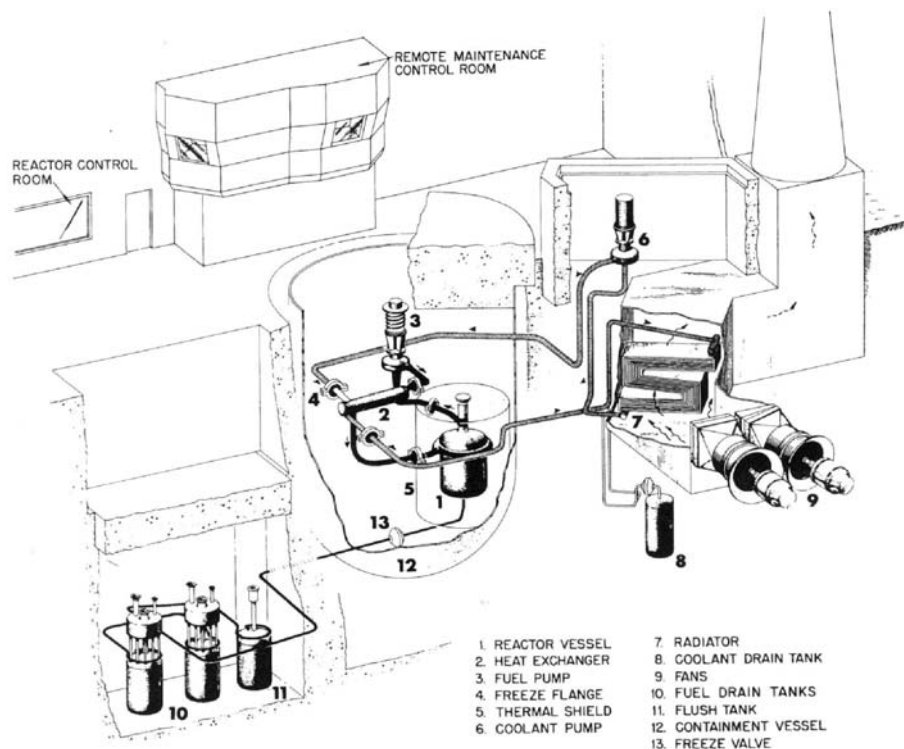


Figure 1 expérience MSRE (Molten Salt Reactor Experiment)

## 4. Les concepts incinérateurs

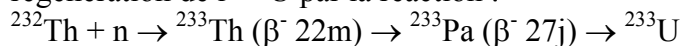
Il existe plusieurs concepts de RSF dédiés à l'incinération des transuraniens issus des filières actuelles fonctionnant à uranium enrichi. Le concept SPHINX, proposé par NRI, permet d'utiliser ces transuraniens sans support fertile, ce qui optimise leur incinération. Ce système a un rapport fission sur capture favorable grâce à l'utilisation d'un spectre épithermique, comprenant une partie rapide relativement importante. Le cœur est un ortho-cylindre rempli de sel combustible. Les réflecteurs axiaux et radiaux sont en graphite, afin de minimiser les pertes de neutrons et de protéger les structures externes. Le sel est à base de fluorure ( $34.7\% \text{}^7\text{LiF} - 37.7\% \text{}^9\text{BeF}_2 - 26.8\% \text{}^{23}\text{NaF} - 0.75\% (\text{NL})\text{F}_{(3,4)}$ ), préféré à un sel à base de chlorure, qui pose des problèmes plus importants du point de vue de la corrosion, et qui contient du  $^{35}\text{Cl}$ , responsable de captures neutroniques importantes.



Les concepts utilisant un modérateur en graphite permettent de réduire l'inventaire en matière fissile nécessaire au fonctionnement du système. De plus, le comportement du système est plus stable et la sûreté mieux assurée. Cependant, ces systèmes nécessitent l'utilisation d'un support fertile pour recycler les actinides mineurs. Afin de garder un taux d'incinération élevé, le support fertile envisagé est le thorium. La vitesse d'incinération est ralentie par rapport au concept SPHINX, mais le taux d'incinération est sensiblement du même ordre de grandeur, du fait d'un inventaire en combustible moins important. Parmi les RSF à spectre épithermique, le concept AMSTER-incinérateur semble le plus efficace. Il s'inspire du projet MSBR, mais a été adapté pour optimiser l'incinération du plutonium et des actinides mineurs. Le concept TIER, proposé par C. Bowman au début des années 1990 semble clairement moins efficace que les concepts cités précédemment, notamment parce que le recyclage de type « once-through » semble difficilement conciliable avec le maintien de la criticité (ou du niveau de sous-criticité) du système.

## 5. Le cycle thorium en RSF

Le retraitement en ligne permet d'optimiser le bilan neutronique du cycle thorium en spectre épithermique. Ce cycle de combustible a au démarrage un bilan positif, qui permet la régénération de l' $^{233}\text{U}$  par la réaction :



Les produits de fission qui s'accumulent dans le combustible empoisonnent vite le réacteur, et le bilan neutronique devient négatif au bout de quelques mois seulement, ce qui rend délicate la conception d'un réacteur régénérateur en combustible solide. Il faut également noter que dans un spectre de neutrons thermalisé, le  $^{233}\text{Pa}$  dégrade également le bilan, neutronique. Sa demi-vie de 27 jours lui laisse le temps de capturer des neutrons de façon non négligeable ; dans ce cas, un noyau d' $^{234}\text{U}$  (non fissile) est produit et l' $^{233}\text{U}$  n'est pas régénéré.

L'utilisation d'un combustible liquide permet de retraiter en ligne ou en batch et de débarrasser le combustible de ces poisons neutroniques.

### 5.1. Le concept MSBR

Outre la somme colossale d'études réalisées par l'ORNL dans les années 60 et 70, ce concept a été ré-évalué récemment en France. D'abord par EDF, qui a ré-examiné le projet historique en l'adaptant à l'utilisation d'uranium enrichi ainsi qu'à l'incinération de transuraniens (concept AMSTER ; Actinide Molten Salt transmuTER). Concluant aux limites d'une telle adaptation, liées à l'incompatibilité entre un spectre modéré par le graphite et l'incinération d'actinides, cette étude a conduit le CNRS à ré-évaluer le projet MSBR lui-même (surgénérateur de puissance basé sur le cycle thorium).

Le projet MSBR historique a en effet été optimisé de manière à obtenir le maximum de surgénération. Le retraitement consistait à retirer rapidement les produits de fission et le  $^{233}\text{Pa}$  ; la totalité du sel combustible devait être retraitée tous les 10 jours, soit un volume de 5 m<sup>3</sup> par jour. Le schéma de retraitement peut être résumé par les 4 étapes suivantes :

- bullage en continu des produits de fission gazeux et métaux nobles
- fluoration de U et Np, réinjecté dans le combustible
- extraction des actinides autres que le thorium (Pa, Pu, Am, Cm, ...) et réinjection différée (décroissance du  $^{233}\text{Pa}$  hors-flux)
- extraction réductrice des lanthanides du sel de thorium

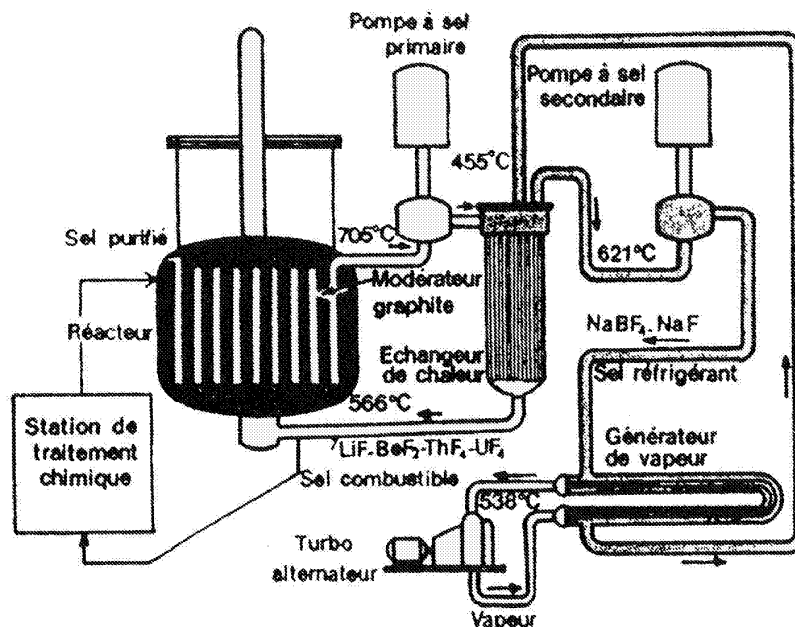


Figure 2 Vue globale du projet MSBR, avec son unité de retraitement associée

Le réacteur (Figure 1) a été modélisé fidèlement selon les données de l'ORNL. L'optimum de surgénération au démarrage est retrouvé pour le sel FLiBe proposé, avec une proportion volumique de sel d'environ 30% en cœur. Avec un volume total de sel d'environ 50 m<sup>3</sup>, dont un tiers se situe hors-flux dans les échangeurs de chaleur, la puissance volumique moyenne dans le sel est d'une centaine de W/cm<sup>3</sup> pour une puissance totale de 2500 MWth (équivalent à 1 GWe). La vitesse d'écoulement vertical du sel est de l'ordre du m/s, et maximale au centre du cœur. Au démarrage, une tonne d'<sup>233</sup>U (dans 70 t de thorium) suffit à rendre le réacteur critique. Les sections efficaces favorables de l'<sup>233</sup>U en spectre thermique et l'absence d'absorption importante expliquent ce très faible inventaire initial.

Le temps rapide d'extraction des lanthanides et du protactinium a été une très lourde contrainte sur le dimensionnement de l'unité de retraitement associée au réacteur, et sur les différents procédés de séparation. Le projet a été abandonné en 1976, au profit d'un projet concurrent de réacteur à neutrons rapides, plus pour des raisons de choix d'investissement qu'à cause de véritables obstacles techniques. Toutefois, on a vérifié qu'un tel retraitement est nécessaire pour rendre le réacteur surgénérateur. En calculant l'évolution de la composition du sel combustible (Figure 2) tout en simulant l'extraction des produits de fission telle qu'elle était prévue, on constate que leur taux de capture est suffisamment réduit pour autoriser un taux de surgénération supérieur à 1 du démarrage (1.09) jusqu'à l'équilibre (1.04, soit une production nette d'<sup>233</sup>U d'environ 40 kg.an<sup>-1</sup>.GWe<sup>-1</sup>).

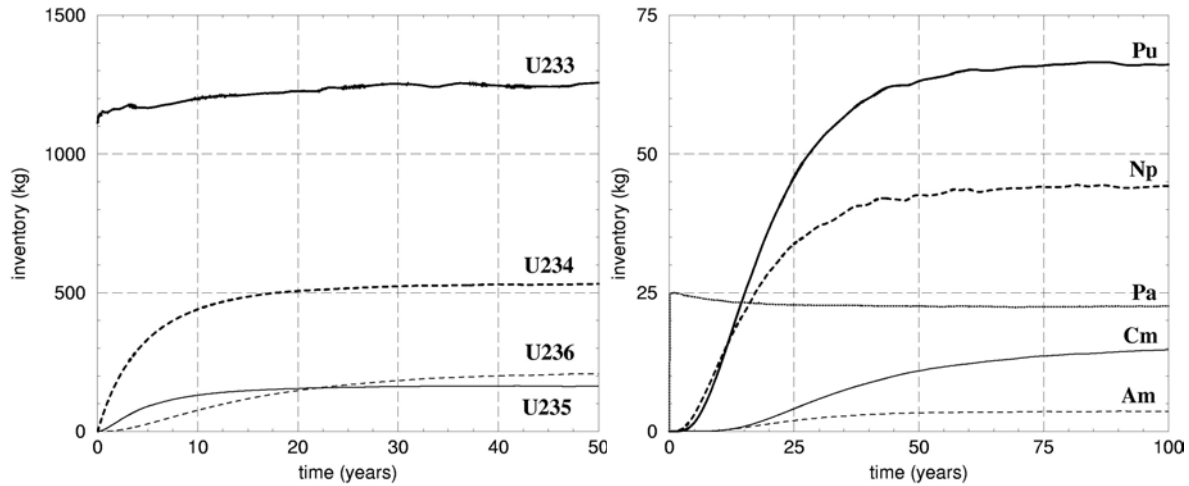


Figure 3 Mise à l'équilibre ré-évaluée de l'inventaire des actinides dans le sel du MSBR

Ce système a pu ainsi être entièrement caractérisé à tout instant. A l'équilibre, l'inventaire des transuraniens reste faible (environ 0.1 tonne) et contient peu de noyaux radioactifs  $\alpha$  gênants (seulement 8 kg de  $^{244}\text{Cm}$  par exemple). Du fait de son extraction, le  $^{233}\text{Pa}$  se désintègre surtout hors-flux, ce qui génère une puissance de quelques MW dans son réservoir de stockage. La principale voie de production de  $^{232}\text{U}$  ici, en spectre épithermique, est la capture sur le  $^{231}\text{Pa}$ . La proportion molaire d' $^{232}\text{U}$  dans l'uranium à l'équilibre est d'environ 0.1%, ce qui est suffisant pour la détection anti-proliférante du gamma associé de 2.6 MeV. La production de tritium de ce réacteur par réaction sur le  $^6\text{Li}$  et le  $^7\text{Li}$  du sel est évaluée à 150 g/an à l'équilibre, soit 50 fois plus qu'un REP mais moitié moins qu'un CANDU. Toujours en termes de déchets produits, un point dur du MSBR est la durée de vie estimée à 5 ans de son modérateur graphite endommagé par les neutrons d'énergie supérieure à la dizaine de keV, posant la question de son recyclage. En ce qui concerne la sûreté, les codes de l'époque ont mal évalués les coefficients de température en négligeant l'effet positif sur la réactivité d'une augmentation de la température du graphite. Il a ainsi été vérifié que le coefficient de température global, annoncé négatif, est en fait légèrement positif.

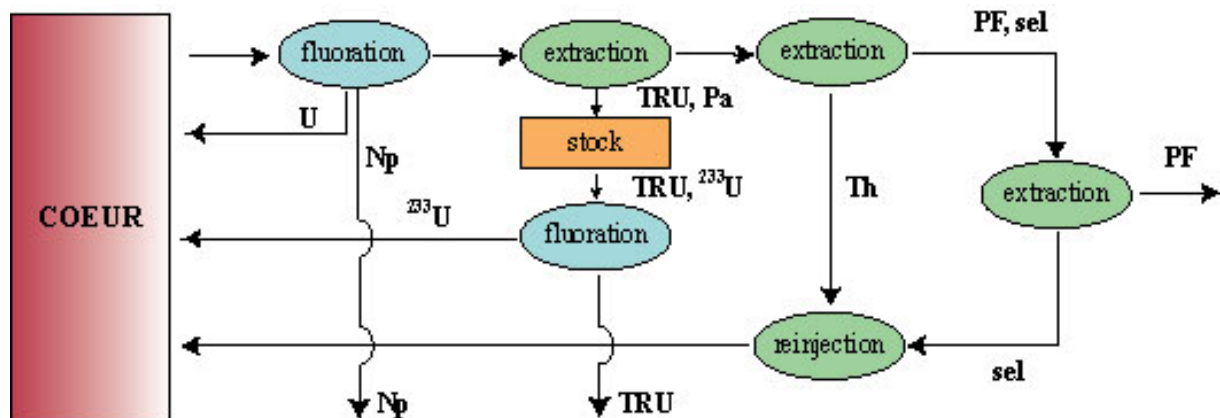
Le bilan de cette ré-évaluation par EDF et le CNRS est instructif : le concept de RSF au thorium est clairement de 4<sup>e</sup> génération, à condition d'être débarrassé de quelques contraintes trop fortes. Les études AMSTER ont montré que l'incinération de transuraniens était difficilement compatible avec le spectre épithermique de ce type de réacteur. L'étude de démarrages  $\text{Th}/\text{Pu} \rightarrow ^{233}\text{U}$  à partir du plutonium disponible est arrivée à la même conclusion, privilégiant ainsi le démarrage direct de RSF juste régénérateurs avec de  $^{233}\text{U}$  produit dans d'autres réacteurs. La marge neutronique libérée par l'abandon de la surgénération peut alors être utilisée pour ralentir et simplifier le retraitement d'une part, et améliorer les coefficients de température (diminution de la proportion de graphite en cœur) d'autre part. Du projet un peu trop ambitieux de surgénérateur MSBR, nous voilà parvenus au projet TMSR (Thorium Molten Salt Reactor) d'un RSF thorium qui soit réellement de 4<sup>e</sup> génération.

## 5.2. Le concept TMSR

Afin de limiter les contraintes de retraitement, nous proposons un concept iso-générateur. En effet, dans un scénario de déploiement massif du nucléaire où les RSF trouvent toute leur légitimité, la présence de REP pour produire  $^{233}\text{U}$  indispensable au démarrage des RSF et/ou

de RNR pour fermer le cycle U-Pu des REP, est tout à fait suffisante pour palier au manque de production d' $^{233}\text{U}$  par les RSF jusqu'à la fin du siècle.

L'isogénération est compatible avec des temps de retraitement du combustible de l'ordre de 6 mois à 1 an. On peut alors envisager une étape préalable à l'extraction des lanthanides, qui consisterait à extraire le thorium du sel. La masse à traiter est de l'ordre de 300 kg par jour (au lieu de 6 tonnes dans le schéma MSBR), qui permet d'adapter une technique de précipitation du thorium par oxydation par exemple, suivie d'une fluoration pour le réinjecter dans le sel. Le schéma de retraitement simplifié est représenté sur la figure suivante.



Ce concept permet d'envisager une validation expérimentale à court terme des principes de base. Une proposition importante est la précipitation du thorium, afin d'obtenir un sel appauvri en actinides avant d'en extraire les lanthanides. Cette étape clé devra être étudiée en détail avant de valider le concept de retraitement simplifié.

Le coefficient de température peut être décomposé en un coefficient associé au sel et un autre au graphite. Le coefficient associé au sel, qui domine le comportement prompt du réacteur, est négatif ( $-1.3 \text{ pcm/K}$ ) dans la dernière évaluation du MSBR. Le coefficient de graphite est lui positif ( $+1.7 \text{ pcm/K}$ ) dans la même évaluation. Cela vient d'un épaulement dans la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$  juste au dessus du pic thermique. Lorsque le graphite s'échauffe, le pic thermique monte en énergie et favorise la fission de l'uranium par rapport à la capture du thorium.

Diverses solutions peuvent être explorées pour retrouver un coefficient de température total négatif, comme la réduction de la masse de graphite en cœur, ou l'introduction d'un poison consommable contenant une résonance d'absorption proche de l'épaulement de la section efficace de fission de  $^{233}\text{U}$ . Ces deux méthodes permettent d'obtenir des coefficients négatifs, mais dégradent légèrement les performances de régénération (durcissement du spectre, consommation de neutrons, ...). Une autre méthode peut être proposée, qui consiste à modifier la géométrie du cœur afin de durcir le spectre neutronique ; dans ce cas, le coefficient de température est amélioré, mais le terme de fuite augmente. Pour rester régénératif, les neutrons de fuite sont récupérés dans une couverture thorium, afin de conserver un taux de régénération optimal.

Le concept décrit précédemment, régénératif et possédant un coefficient de température significativement négatif peut servir de concept de référence dans des études expérimentales, visant à valider les concepts de base de la chimie des sels, de la partie retraitement, et de la partie neutronique, notamment des paramètres de sûreté. Au-delà de ce concept de référence,

de nombreuses voies sont explorées pour optimiser telle ou telle caractéristiques particulières comme, les coefficients de sûreté, taux de surgénération, inventaire en fissile, durée de vie du graphite, retraitement, et illustrent le grand potentiel des réacteurs à sels fondus.

### 5.2.1. Radiotoxicités induites

Le cycle thorium en spectre thermique est caractérisé par une faible production d'actinides mineurs (Np, Pu, Am et Cm). Les quantités d'actinides rejetées dépendent fortement des capacités d'extraction, et des taux de pertes d'actinides à chaque étape du retraitement. Elles dépendent également du type de retraitement choisi ; par exemple, extraire et ne pas réinjecter le neptunium du sel à chaque étape de fluoration permettrait de réduire d'un facteur 50 environ la production d'actinides mineurs plus lourds (Pu, Am, Cm, ...). Le tableau suivant donne, pour un réacteur de 1GWe, l'inventaire des transuraniens à l'équilibre dans le cas d'un recyclage, et les quantités rejetées par an dans le cas où tous les actinides sont séparés du sel.

Element	TRU recyclés Inventaire en coeur	TRU non recyclés Rejets
Np	45 kg	12 kg / an
Pu	67 kg	4 kg /an
Am	4 kg	100 g / an
Cm	17 kg	3 g / an
Bk	10 g	90 ng / an
Cf	80 g	5 µg / an

On observe que dans le cas où les actinides ne sont pas recyclés, les rejets annuels sont du même ordre de grandeur que ceux d'un réacteur rapide U/Pu avec recyclage homogène des actinides mineurs et des taux de pertes de  $10^{-3}$ . La figure suivante donne les radiotoxicités induites de différents cycles, et illustre l'avantage important du cycle du thorium. Il faut noter que le cycle du thorium permet de réduire la puissance thermique résiduelle à long terme du même ordre de grandeur.

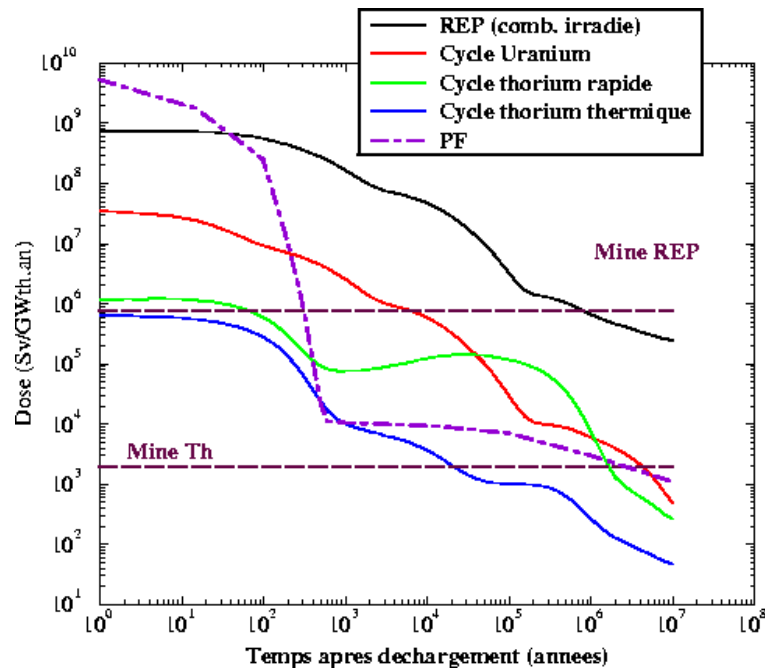


Figure 4 Comparaison des radiotoxicités induites pour différents cycle régénareteurs.

## 6. Programme de recherche

En collaboration avec EdF et le CEA, les équipes CNRS travaillent depuis près de 8 ans sur le cycle thorium mettant quantitativement en évidence les avantages déterminants de cette filière. Le concept TMSR (Thorium Molten Salt Reactor) à retraitement simplifié a été reconnu par l'ensemble des partenaires comme étant le concept de référence à étudier dans le cadre du 6ème PCRD. Signalons aussi l'étude « Thorium as a waste management option » du 4ème PCRD, ainsi que le projet MOST du 5ème PCRD qui avait pour but de rassembler sous une forme précise ordonnée et utilisable tout le savoir-faire obtenu dans le cadre de l'expérience MSRE (Molten Salt Reactor Experiment à Oak-Ridge au début des années 60) et des études MSBR qui s'en suivirent. L'Europe et les États Unis participent à ce programme.

Au niveau international un large intérêt existe, tandis que des moyens humains significatifs mais un peu dispersés sont consacrés à l'étude de cette filière. Un programme européen sur ce concept va être proposé dans un appel d'offre européen fin 2004.

Au niveau national, dans le cadre du GDR GEDEPEON, le concept de RSF ThU3 est, avec les RNR U-Pu notamment gaz, étudié comme l'un des deux concepts d'intérêt pour le nucléaire du futur. Un programme concerté de recherche a été mis en place au CNRS avec une trentaine de chercheurs (physiciens et chimistes) pour démontrer la faisabilité scientifique du concept de référence Th/U à retraitement simplifié.

### 5.1 Problématique des recherches à entreprendre

Ce concept de référence de RSF-Thorium à retraitement simplifié ayant été défini, les principaux points à étudier de façon coordonnée sont les suivants :

- Approfondir les connaissances sur les sels fluorures complexes à composition très variées (Li Be Th U, mais aussi Pa, Np, Pu, Am, Cm de même que tous les produits de fission, de façon à s'assurer de la stabilité du sel
- Établir et optimiser les performances et taux d'extraction des produits de fission gazeux ou métaux nobles par extraction gazeuse en garantissant une très faible pollution des PF par les éléments lourds très radiotoxiques
- Établir la faisabilité de la précipitation du thorium et de l'extraction différée des produits de fission (lanthanides) par des méthodes et des procédés efficaces et garantissant aussi une très faible pollution des PF par les éléments lourds très radiotoxiques.
- Maîtrise de la corrosion
- S'assurer que compte tenu de la composition des sels les coefficients de réactivité sont négatifs et ou peuvent être ajustés de façon fiable. Il s'agit notamment de s'assurer de la précision des sections efficaces des principaux composants et de valider complètement l'obtention de l'isogénération
- Assurer une cohérence d'ensemble au système réacteur-unité de retraitement.
- Etudier une boucle de sel fondu à l'échelle du laboratoire.
- Proposer un dessin réaliste d'un réacteur et de son unité de retraitement pouvant mener à la définition d'un démonstrateur

## 5.2 Aspect sciences chimiques

Les tâches envisagées pour évaluer la faisabilité scientifique des RSF-Th doivent être conduites dans un environnement pluridisciplinaire où interagissent de façon particulièrement étroite et continue, physique-neutronique des réacteurs et opérations de contrôle – purification du sel. Si on se limite à l'extraction de PF gazeux ou de type métallique par un balayage d'hélium et au traitement du sel combustible pour extraire partiellement les lanthanides, on fait intervenir les grands thèmes suivants :

- La thermodynamique de mélange de sels fondus et d'alliages liquides complexes contenant des actinides et des lanthanides : mesures de propriétés (diagrammes de phases, activités), représentation et évaluation critique des propriétés dans un but d'ingénierie (transfert du fondamental à l'appliqué), estimation des propriétés par approches théoriques (difficultés de mesures pour les actinides, généralisation et compréhension des résultats).
- La germination-croissance des PF métalliques dans le combustible et les comportements liés aux phénomènes capillaires (coalescence, transfert du liquide au gaz, ségrégation sur les parois, agrégation). Éviter ou contrôler les dépôts de certains éléments dans les diverses parties du circuit du sel primaire relève de la même problématique
- L'élaboration d'un acier réfractaire résistant à la corrosion par les sels et les métaux liquides et ayant une bonne tenue sous irradiation et à des températures les plus élevées possibles.

Les questions relatives aux matériaux du cœur et aux cinétiques de transfert sont un peu moins urgentes à traiter mais une réflexion doit cependant être entreprise dès le début des travaux, quitte à être amplifiée lorsque les aspects précédemment cités seront venus à maturité. Les thèmes concernés sont :

- Le conditionnement du graphite du cœur pour résister à l'irradiation, à la corrosion par certains PF (Nb, Sr, Ba) et à la pénétration par le Xe (imprégnation, dépôt).
- La mise au point de techniques de caractérisation chimique du sel combustible (électrochimiques ou optiques) pour le contrôle on-line des opérations.

- La cinétique des échanges chimiques au cours du traitement du sel (fluoration de U, Np et Pu dans le sel liquide – réduction des Ln sur un alliage liquide - corrosion).
- La modélisation mécanistique des réacteurs avec couplage neutronique-thermique-chimie-hydrodynamique.

La complexité des problèmes posés touche à des thèmes fondamentaux de la chimie comme la thermodynamique de mélange et la cinétique d'échange dans les sels fondus et les alliages métalliques. La problématique liée à la germination, la croissance, l'agrégation et la ségrégation des PF métalliques, fait appel à une compréhension tout à fait fondamentale des processus chimiques mis en jeu. Il en va de même pour les phénomènes liés à la corrosion. Cette complexité se traduit aussi d'un point de vue expérimental et théorique par la mise en œuvre d'outils très sophistiqués. Citons à titre d'exemple les modélisations de dynamique moléculaire quantique dans les études de thermodynamique et cinétique des sels fondus et des alliages métalliques.

### ***5.3 aspects physiques des réacteurs***

L'étude des propriétés neutroniques générales par simulation de ce type de réacteurs est largement avancée et c'est d'ailleurs sur cette base que le concept de RSF-Th à retraitement simplifié a été proposé. Les études de neutronique par simulation permettent de déterminer avec précision la composition chimique du sel à retraiter dans différentes stratégies de retraitement et sont donc à mener en corrélation étroite avec la progression des connaissances concernant l'extraction des produits de fissions.

*La neutronique, les études systèmes et de scénarios :*

Les études par simulation ont montré que les données physiques du sel et des composants des réacteurs devaient être déterminées avec une précision accrue compte tenu d'une économie de neutrons très tendue. Les données neutroniques nécessaires doivent faire l'objet d'un programme expérimental poussé, et ciblé sur la problématique RSF-Th.

Les études systèmes doivent être poursuivies activement non seulement sur les paramètres de sûreté, mais aussi sur l'intégration de tous les composants du réacteur faisant intervenir notamment la thermohydraulique, la gestion des sels, la sûreté, l'évacuation de la puissance résiduelle, et dans un second temps, la gestion concrète des PF (très actifs) et du tritium.

Les études de scénarios portant notamment sur la production d' $^{233}\text{U}$  par les réacteurs de type REP actuel ou des réacteurs futurs de type RNR doivent être conduites en parallèle.

## **6. Conclusion**

Les réacteurs à sels fondus présentent aujourd'hui des avantages incontestables, dans le cadre de la gestion des déchets (incinération des actinides mineurs) et de la production d'énergie durable, basée sur le cycle thorium en spectre de neutrons thermiques.

L'expérience acquise par le MSRE et la redéfinition récente d'un retraitement aux contraintes fortement allégées pour le concept au thorium, et la relative simplicité qui en découle, en font un concept de Génération IV très prometteur, et qui ne présente pas de verrous technologiques insurmontables.



Le concept de réacteur à sels fondus est adaptable à différents types de scénarios, d'un arrêt du nucléaire (incinération de matière fissile rapide) à des scénarios de croissance forte et rapide du nucléaire (faible inventaire en matière fissile), et présente ainsi un grand intérêt dans la problématique du nucléaire du futur. La définition d'un concept de référence à spectre thermique basé sur le cycle thorium régénérateur a permis de cibler les verrous technologiques à lever en priorité et de déterminer un programme de recherche cohérent dans le cadre du forum génération 4.

## Références

- R.C. Briant, A.M. Weinberg, Aircraft Nuclear Propulsion Reactor, Nuclear Science and Engineering, vol. 2, 795-853 (1957)
- P. N. Haubenreich et al (1970), Experience with the Molten Salt Reactor Experiment, Nucl. App. and Tech. 8, 118-136.
- E.S. Bettis et al (1970), The Design and Performance Features of a Single-Fluid Molten-Salt Breeder Reactor, Nucl. App. and Tech. 8, 190-207.
- Groupe de travail CEA-EDF ``cœur" (1983), Synthèse des études réalisées entre 1973 et 1983, dossier ``cœur", EDF Report HT/12/75/83.
- K. Furukawa et al (1990), Thorium Molten-Salt Nuclear Energy Synergetics, Journal of Nuclear Science and Technology 27, 12, 1157-1178.
- D. Lecarpentier and J. Vergnes (2002), The AMSTER Concept, Nucl. Eng. and Des. 216, 43-67.
- Generation IV International Forum (2002), A Technology Roadmap for Generation IV Nuclear Energy Systems, Report GIF-002-00.
- M. E. Whatley et al (1970), Engineering Development of the MSBR Fuel Recycle, Nucl. App. and Tech. 8, 170-178.

## Proceedings

- D. Lecarpentier et al., Temperature feedbacks of a thermal molten salt reactor : compromise between stability and breeding performances - ICAPP'03, 4-7 mai 2003, Cordoba, Spain.
- M. Delpech et al., Benchmark of Dynamic Simulation Tools for Molten Salt Reactors - GLOBAL 2003, 16-20 novembre 2003, New-Orleans, USA.
- JM. Loiseaux, S. David, D. Heuer, A. Nuttin, La filière thorium, une option intéressante pour le nucléaire du futur, Académie des Sciences, CR Physique 3 (2002) 1023-1034.
- A. Nuttin et al (2001), Thorium Fuel Cycles: a Graphite-Moderated Molten Salt Reactor versus a Fast Spectrum Solid Fuel System, GLOBAL 2001, Paris, France, 9-13 September.
- L. Mathieu et al., Thorium Molten Salt Reactor: from high breeding to simplified reprocessing - GLOBAL 2003, 16-20 novembre 2003, New-Orleans, USA.
- E. Merle-Lucotte et al., Molten Salt Reactors and Possible Scenarios for Future Nuclear Power Deployment, Physor 2004.

## **Thèses**

- L. Mathieu, Potentialité des réacteurs à sels fondus dans les scénarios du futur : neutronique, chimie et montée en puissance du parc, Université Joseph Fourier - Grenoble I, LPSC, soutenance 2005.
- F. Perdu, Contribution aux études de sûreté des filières innovantes de réacteurs nucléaires, thèse de doctorat, Université Joseph Fourier - Grenoble I, LPSC 03-43, 2003.
- A. Nuttin (2002), Potentialités du concept de réacteur à sels fondus pour une production durable d'énergie nucléaire basée sur le cycle thorium en spectre épithermique, Université Joseph Fourier - Grenoble I, thèse de doctorat, 2002, ISN02-88.
- D. Lecarpentier, le concept AMSTER, aspects physique et sûreté, thèse de doctorat, Conservatoire National des Arts et Métiers, 2001.
- M. Valade, Etude de l'incinération des transuraniens en réacteurs à sels fondus, thèse de doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg, 2000.
- V. Berthou, le concept TASSE – Thorium ADS with simplified fuel cycle for long term energy production, these de doctorat, Université d'Evry, Val d'Essonne, 2000.

## **Remerciements**

Cette note technique s'appuie sur le travail effectué depuis plusieurs années par les physiciens du CNRS, principalement les membres du groupe « physique des réacteurs » du LPSC de Grenoble : D. Heuer, C. Le Brun, R. Brissot, A. Billebaud, E. Liatard, J.-M. Loiseaux, O. Méplan, E. Merle, H. Nifenecker, J. Wilson, qui ont collaboré à l'écriture, ainsi que H. Doubre (CSNSM Orsay). Cette note s'appuie également sur le travail important effectué dans le cadre du programme MOST du 5<sup>ème</sup> PCRD, regroupant un nombre important de laboratoires européens.